

LIGHT EMITTING ELEMENT AND METHOD OF MANUFACTURING THE SAME

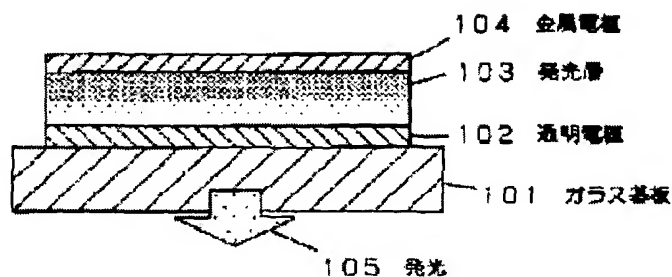
Patent number: JP2001155862
Publication date: 2001-06-08
Inventor: HORI YOSHIKAZU; FUKUYAMA MASAO
Applicant: MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD
Classification:
- international: **H01L51/50; H05B33/14; H01L51/50; H05B33/14;**
(IPC1-7): H05B33/14
- european:
Application number: JP19990332300 19991124
Priority number(s): JP19990332300 19991124

Report a data error here

Abstract of JP2001155862

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light emitting element having high reliability.

SOLUTION: A light emitting layer 103 is made from two kinds of organic substances of triphenylamine (TPD) having a positive hole carrier, and tris(8-hydroxy-quinolate)aluminum (Alq) having an electron carrying property and light emitting property, a composition ratio (mol ratio) of the TPD and Alq is varied gradually from a positive electrode to a negative electrode to realize high reliability of display elements.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-155862

(P 2 0 0 1 - 1 5 5 8 6 2 A)

(43) 公開日 平成13年6月8日(2001.6.8)

(51) Int. Cl. ⁷

識別記号

F I

ターコード (参考)

H05B 33/14

H05B 33/14

B 3K007

33/22

33/22

B

D

審査請求 未請求 請求項の数11 O L (全6頁)

(21) 出願番号

特願平11-332300

(22) 出願日

平成11年11月24日(1999.11.24)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 堀 義和

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1

号 松下技研株式会社内

(72) 発明者 福山 正雄

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1

号 松下技研株式会社内

(74) 代理人 100097445

弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

Fターム(参考) 3K007 AB00 AB02 AB17 CA01 CB01

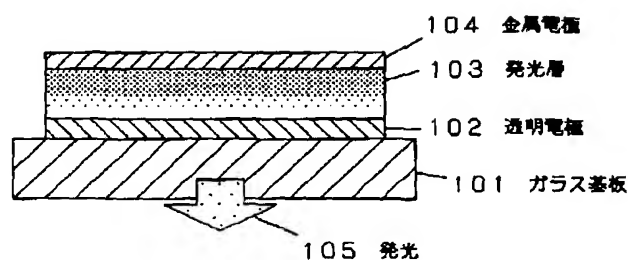
DA00 DB03 EB00 FA01

(54) 【発明の名称】 発光素子及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 高信頼性の表示素子を提供する。

【解決手段】 発光層103が、正孔輸送性を有するトリフェニルジアミン(TPD)と、電子輸送性及び発光性を有するアルミキノリノール錯体(Alq)の二種類の有機材料でなり、AlqとTPDの組成比(モル比)は陽極近傍から陰極近傍にかけて徐々に変化している構成により、高信頼性の表示素子を実現する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基板と、前記基板上に少なくとも第 1 の電極、有機発光層、及び第 2 の電極が順次形成された発光素子であり、前記有機発光層が電子輸送性能と正孔輸送性能の両者のキャリア輸送性能を有するとともに、層の厚さ方向に正孔輸送性能の高い領域から電子輸送性能の高い領域に徐々に変化していることを特徴とする発光素子。

【請求項 2】 有機発光層が、電子輸送性能に比較して高い正孔輸送性能を有する物質と、正孔輸送性能に比較して高い電子輸送性能を有する物質を含み、かつこれらの物質の混合比が層の厚さ方向に徐々に変化していることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子。

【請求項 3】 電子輸送性能に比較して高い正孔輸送性能を有する物質が発光性を示すことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子。

【請求項 4】 電子輸送性能に比較して高い正孔輸送性能を有する物質が発光性を示すとともに、異なる波長の光を発する複数の正孔輸送性の物質を有することを特徴とする請求項 2 記載の発光素子。

【請求項 5】 正孔輸送性能に比較して高い電子輸送性能を有する物質が発光性を示すことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子。

【請求項 6】 正孔輸送性能に比較して高い電子輸送性能を有する物質が発光性を示すとともに、異なる波長の光を発する複数の電子輸送性の物質を有することを特徴とする請求項 2 記載の発光素子。

【請求項 7】 有機発光層が蛍光又は燐光を発する物質を含むことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子。

【請求項 8】 有機発光層が、異なる波長の光を発する複数種の蛍光物質又は燐光物質を含むことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子。

【請求項 9】 第一の電極が形成された基板上に、昇華温度の異なる電子輸送性物質と正孔輸送性物質の混合媒体を真空中で加熱蒸着して付着し、更にその表面に第二の電極を形成することを特徴とする発光素子の製造方法。

【請求項 10】 電子輸送性物質の昇華温度が正孔輸送性物質の昇華温度より高いことを特徴とする請求項 9 記載の有機発光素子の製造方法。

【請求項 11】 正孔輸送性物質の昇華温度が電子輸送性物質の昇華温度より高いことを特徴とする請求項 9 記載の有機発光素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電界発光による自発光型の表示素子（EL）に関するものであり、特に有機 EL 素子の信頼性を向上させることを目的とするものである。また本発明は、有機 EL 素子の視認性を高めることを目的とするものである。

【0002】

【従来の技術】 高度情報化マルチメディア社会の発展に伴い、低消費電力・高画質の平板型表示素子の開発が活発化している。非発光型の液晶表示素子は低消費電力を特長としてその位置を確立し、携帯情報端末等への応用と更なる高性能化が進んでいる。一方、自発光型の表示素子は外光に影響されにくく、室内での認識が容易なことから、従来の CRT の代替えや、更には CRT では実現困難な大画面表示や超高精細表示の実現に向けて、電界発光型ディスプレイ（EL）の開発が活発化している。

【0003】 1987 年にタンらがアプライド・フィジックス・レターズ、1987 年、第 51 巻、913 頁（Appl. Phys. Lett. Vol. 51, p. 913 (1987)）において、基板上に正孔注入用電極層、有機正孔輸送層、有機電子輸送性発光層、電子注入用電極層を付着形成された構造の有機 EL 素子を提案して以来、この素子が平板型自発光素子であることに加えて、低消費電力でかつ高輝度、高速応答、広視野角表示が可能であることから大きな注目を浴び、有機 EL ディスプレイに関する研究開発が活発化している。特に最近では、有機 EL による文字・数字表示素子が実用化され、更に画像表示素子が試作されるに至っている。

【0004】 従来の有機発光素子の概要構成を図 5 を用いて示す。

【0005】 ガラス基板 501 の上に酸化インジウム錫（ITO）等の比較的大きなイオン化ポテンシャルを有し正孔の注入が容易な透明導電性薄膜でなる陽極 502 が形成されている。次にその表面のほぼ全面に正孔輸送層 503 及び電子輸送性発光層 504 が順次付着している。そしてその表面に銀マグネシウム合金（AgMg）等の比較的低い仕事関数を有する金属層でなる陰極 505 が形成されている。

【0006】 電子輸送性の発光層は一般的に金属に比較して低い仕事関数を有するが、AgMg 合金等の低仕事関数を有する金属を陰極 505 として用いることにより電子の注入とその輸送が比較的容易に実現できる。また、正孔輸送層 503 は比較的大きなイオン化ポテンシャルを有するので、酸化インジウム錫（ITO）等のイオン化ポテンシャルの大きな材料を陽極 502 として用いることにより正孔の注入とその輸送が比較的容易に実現できる。陰極 505 に対して陽極 502 に正の直流電圧を印加することにより、陽極 502 から正孔輸送層 503 に正孔が注入され、また陰極 505 から電子輸送性発光層 504 に電子が注入され、更に正孔輸送層 503 と電子輸送性発光層 504 の接合部近傍の電子輸送性発光層 504 中でこれらが結合することにより励起子が形成され発光 506 が生じる。この発光 506 は透明導電性薄膜からなる陽極 502 及びガラス基板 501 を通して観測がなされる。この発光原理はガリウム砒素等で形

成された無機の発光ダイオードに類似しており、PN 接合された化合物半導体に電子と正孔を注入することにより接合部近傍で電子と正孔の再結合することによる発光と対応させることができる。そして、電子輸送層は N 型化合物半導体、正孔輸送層は P 型化合物半導体に対比させることができる。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】しかし、従来の有機発光素子は正孔輸送層と電子輸送層の界面近傍で正孔と電子の再結合が生じ発光が生じるので界面近傍での局所的な温度上昇が激しく界面近傍での劣化が生じやすく、特に高輝度で動作させる場合には温度上昇が大きくなるので、寿命が極めて短いという欠点があった。また、発光性の電子輸送材料を用いる為に発光色が材料で決定されるために、複数の混合色や白色等の幅広い発光スペクトルを有する発光色を得ることが困難であった。

【0008】本発明はこのような課題を克服し、高輝度で長寿命、かつ幅広い発光スペクトルを有する有機 LED を実現するものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明は、基板上に少なくとも第 1 の電極、有機発光層、及び第 2 の電極が順次形成された発光装置であり、しかも該有機発光層が電子輸送性能と正孔輸送性能の両者のキャリア輸送性能を有するとともに正孔輸送性能の高い領域から電子輸送性能の高い領域に徐々に変化していることを特徴とする発光素子である。

【0010】また本発明は、第一の電極の付着した基板上に、昇華温度の異なる電子輸送性物質と正孔輸送性物質の混合媒体を真空中で加熱蒸着して付着し、更にその表面に第二の電極を形成することを特徴とする有機発光素子の製造方法である。

【0011】

【発明の実施の形態】本発明請求項 1 記載の発明は、基板と、前記基板上に少なくとも第 1 の電極、有機発光層、及び第 2 の電極が順次形成された発光素子であり、前記有機発光層が電子輸送性能と正孔輸送性能の両者のキャリア輸送性能を有するとともに、層の厚さ方向に正孔輸送性能の高い領域から電子輸送性能の高い領域に徐々に変化していることを特徴とする発光素子であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0012】請求項 2 記載の発明は、有機発光層が、電子輸送性能に比較して高い正孔輸送性能を有する物質と、正孔輸送性能に比較して高い電子輸送性能を有する物質を含み、かつこれらの物質の混合比が層の厚さ方向に徐々に変化していることを特徴とする請求項 1 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0013】請求項 3 記載の発明は、電子輸送性能に比較して高い正孔輸送性を有する物質が発光性を示すこと

を特徴とする請求項 2 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0014】請求項 4 記載の発明は、電子輸送性能に比較して高い正孔輸送性を有する物質が発光性を示すとともに、異なる波長の光を発する複数の正孔輸送性の物質を有することを特徴とする請求項 2 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命かつ、幅広い発光スペクトルを有する発光素子を実現できる。

【0015】請求項 5 記載の発明は、正孔輸送性能に比較して高い電子輸送性を有する物質が発光性を示すことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0016】請求項 6 記載の発明は、正孔輸送性能に比較して高い電子輸送性を有する物質が発光性を示すとともに、異なる波長の光を発する複数の電子輸送性の物質を有することを特徴とする請求項 2 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命かつ、幅広い発光スペクトルを有する発光素子を実現できる。

【0017】請求項 7 記載の発明は、有機発光層が蛍光又は燐光を発する物質を含むことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0018】請求項 8 記載の発明は、有機発光層が、異なる波長の光を発する複数種の蛍光物質又は燐光物質を含むことを特徴とする請求項 2 記載の発光素子であり、高輝度で長寿命かつ、幅広い発光スペクトルを有する発光素子を実現できる。

【0019】請求項 9 記載の発明は、第一の電極が形成された基板上に、昇華温度の異なる電子輸送性物質と正孔輸送性物質の混合媒体を真空中で加熱蒸着して付着し、更にその表面に第二の電極を形成することを特徴とする発光素子の製造方法であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0020】請求項 10 記載の発明は、電子輸送性物質の昇華温度が正孔輸送性物質の昇華温度より高いことを特徴とする請求項 9 記載の有機発光素子の製造方法であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0021】請求項 11 記載の発明は、正孔輸送性物質の昇華温度が電子輸送性物質の昇華温度より高いことを特徴とする請求項 9 記載の有機発光素子の製造方法であり、高輝度で長寿命な発光素子を実現できる。

【0022】（実施の形態 1）本発明第 1 の実施の形態における発光素子について図 1 を参照しながら説明する。

【0023】図 1 において、101 はガラス基板である。その表面には正孔を注入するための酸化インジウム錫でなる透明電極（陽極）102、正孔輸送性を有するトリフェニルジアミン（TPD [N,N'-bis(3-methylphenyl)-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine]）と、電子輸送性及び発光性を有するアルミキノリノール錯体（Alq [tr

is(8-hydroxyquino) aluminum] の二種類の有機材料でなる発光層103、銀マグネシウム合金でなる金属陰極層からなる金属電極104が順次形成されている。発光層103において、AlqとTPDの組成比(モル比)は陽極である透明電極102近傍から陰極である金属電極104近傍にかけて徐々に変化しており、陰極近傍では9:1、陽極近傍では1:9に設定されている。陰極に対して陽極に正の直流電圧を印加することにより、発光層103に陽極(ITO)である透明電極102から正孔が注入され、また陰極である金属電極104から電子が注入されることにより、発光層103中でこれらが結合することにより励起子が形成され発光105が生じる。この発光は透明電極102及びガラス基板101を通して観測がなされる。

【0024】この発光素子に通電試験を実施したところ、1000カンデラの初期輝度が500カンデラに低減する時間(半減時間)は、従来の構成における動作寿命が500時間であるのに対し、本発明における発光素子については半減時間が1500時間に改善されていることが判明した。

【0025】上記の実施の形態においては、発光層103が電子輸送性を有する発光性の物質と正孔輸送性を有する物質の混合層で形成されているが、ジアミノジスチリルベンゼン等の正孔輸送性を有する発光性の物質と電子輸送性を有する物質の混合層で形成されてもかまわない。また、発光性を有する正孔輸送性の物質と電子輸送性を有する発光性の物質の混合層で形成してもかまわない。

【0026】(実施の形態2)第1の実施の形態においては、ガラス基板上に透明電極を形成し、正孔輸送性物質、電子輸送性物質、陰極を順次形成しているが必ずしもこの順である必要はなく、逆の構成であってもよい。

【0027】本発明第2の実施の形態における発光素子について図2を参照しながら説明する。

【0028】図2において、201は絶縁性基板である。その表面には電子を注入するための銀マグネシウム合金でなる金属電極202、電子輸送性及び発光性を有するアルミキノリノール錯体(Alq[tris(8-hydroxyquino) aluminum])と正孔輸送性を有するトリフェニルジアミン(TPD[N,N'-bis(3-methylphenyl)-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine])の二種類の有機材料でなる発光層203、正孔注入を行うための銅フタロシアニン層からなる正孔注入層204、酸化インジウム錫でなる透明電極205が順次形成されている。発光層203において、AlqとTPDの組成比(モル比)は陰極近傍から正孔注入層204近傍にかけて徐々に変化しており、金属電極202(陰極)近傍では9:1、正孔注入層204近傍では1:9に設定されている。

【0029】陰極(金属電極202)に対して陽極(透明電極205)に正の直流電圧を印加することにより、

発光層203に陽極205から正孔が注入され、また陰極202から電子が注入され、更に発光層203中でこれらが結合することにより励起子が形成され発光206が生じる。この発光は透明電極205を通して観測がなされる。

【0030】この発光素子に通電試験を実施したところ、1000カンデラの初期輝度が500カンデラに低減する時間(半減時間)は、従来の構成における動作寿命が500時間であるのに対し、本発明における発光素子については半減時間が1500時間に改善されていることが判明した。

【0031】上記の実施の形態においては、発光層103が電子輸送性を有する発光性の物質と正孔輸送性を有する物質の混合層で形成されているが、ジアミノジスチリルベンゼン等の正孔輸送性を有する発光性の物質と電子輸送性を有する物質の混合層で形成されてもかまわない。また、発光性を有する正孔輸送性の物質と電子輸送性を有する発光性の物質の混合層で形成してもかまわない。

20 【0032】(実施の形態3)本発明第3の実施の形態における発光素子について図3を参照しながら説明する。

【0033】図3において、301はガラス基板である。その表面には正孔を注入するための酸化インジウム錫でなる透明電極(陽極)302、正孔輸送性を有するトリフェニルジアミン(TPD[N,N'-bis(3-methylphenyl)-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine])と、電子輸送性を有するアルミキノリノール錯体(Alq[tris(8-hydroxyquino) aluminum])及び発光性色素であるルブレンの三種類の有機材料からなる発光層303、銀マグネシウム合金でなる金属電極304が順次形成されている。発光層303においてはAlqとTPDの組成比(モル比)は陽極(透明電極302)近傍から陰極(金属電極304)近傍にかけて徐々に変化しており、陰極(金属電極304)近傍では9:1、陽極(透明電極302)近傍では1:9に設定されているとともに、発光性色素はキャリア輸送性の材料に対して1%の濃度比で一様に分布している。陰極(金属電極304)に対して陽極(透明電極302)に正の直流電圧を印加することにより、発光層303に陽極(透明電極302)から正孔が注入され、また陰極(金属電極304)から電子が注入され、更に発光層中でこれらが結合することにより励起子が形成され発光305が生じる。この発光は透明電極302及びガラス基板301を通して観測がなされる。

【0034】この発光素子に通電試験を実施したところ、1000カンデラの初期輝度が500カンデラに低減する時間(半減時間)は、従来の構成における動作寿命が1000時間であるのに対し、本発明における発光素子については半減時間が2000時間に改善されていることが判明した。

【0035】上記の実施例においては、正孔輸送性を有する物質としてトリフェニルジアミン (TPD[N,N'-bis(3-methylphenyl)-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine])、電子輸送性を有する物質としてアルミキノリノール錯体 (Alq[tris(8-hydroxyquino) aluminum])、発光性の物質としてルブレンを使用しているが必ずしもこれらに限定されることはない。また発光性の物質として一種類の色素を用いても一様に分布させているが、複数種の色素を用いてもよく、また必ずしも一様である必要はない。

【0036】(実施の形態4) 本発明の発光素子の製造方法に関する実施の形態について図4を参照しながら説明する。

【0037】まず、図4(a)に示すように、絶縁性基板401の表面に電子を注入するための銀マグネシウム合金でなる金属電極402を真空蒸着で形成する。次に、同図(b)に示すように、電子輸送性及び発光性を有するアルミキノリノール錯体 (Alq[tris(8-hydroxyquino) aluminum]) と正孔輸送性を有するトリフェニルジアミン (TPD[N,N'-bis(3-methylphenyl)-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine]) の二種類の有機混合材料をるつぽに設置し真空中で徐々に加熱することにより基板表面に蒸着付着する。初期には時昇華温度の低いアルミキノリノール錯体 (Alq[tris(8-hydroxyquino) aluminum]) が主に蒸着され、徐々に正孔輸送性を有するトリフェニルジアミン (TPD[N,N'-bis(3-methylphenyl)-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine]) が主に蒸着される。その結果AlqとTPDの組成比(モル比)が徐々に変化した発光層403が形成される。次に同図(c)に示すように、正孔注入を行うための銅フタロシアニンを真空蒸着することにより正孔注入層を形成する。最後に同図(d)に示すように、スパッタリング法等により酸化インジウム錫でなる透明電極(陽極)405を順次形成する。

【0038】これらの方法により第2の実施の形態に記載した構造の発光素子が構成される。

【0039】本実施の形態においては基板上に陰極を設置し、昇華温度の低い電子輸送材料と昇華温度の高い正

孔輸送材料を同一のるつぽから真空蒸着することにより発光層を形成し、その後陽極を形成しているが、基板上に陽極を設置し、相対的に昇華温度の低い正孔輸送材料と相対的に昇華温度の高い電子輸送材料を同一のるつぽから真空蒸着することにより発光層を形成し、その後陰極を形成することも可能である。

【0040】また、本実施の形態では発光性の電子輸送層と非発光性の正孔輸送層を同一のるつぽから真空蒸着することにより単層の発光層を形成しているが、発光性の正孔輸送層と非発光性の電子輸送層を同一のるつぽから真空蒸着することにより単層の発光層を形成することも可能である。また発光性の正孔輸送層と発光性の電子輸送層を同一のるつぽから真空蒸着することにより単層の発光層を形成することも可能である。

【0041】更に、非発光性の正孔輸送層と非発光性の電子輸送層を同一のるつぽから真空蒸着すると同時に異なる別のるつぽから発光材料を同時に蒸着することにより単層の発光層を形成することも可能である。

【0042】

【発明の効果】以上、実施の形態を用いて示した様に、本発明においては発光層を正孔輸送性の材料と電子輸送性の材料の濃度勾配を有する構成とすることにより、長寿命の発光素子を実現し得るものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明第1の実施の形態における発光素子の断面図

【図2】同第2の実施の形態における発光素子の断面図

【図3】同第3の実施の形態における発光素子の断面図

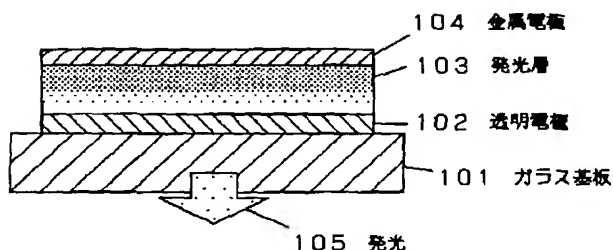
【図4】同第4の実施の形態における発光素子の製造プロセスを示す図

【図5】従来の有機発光素子の断面図

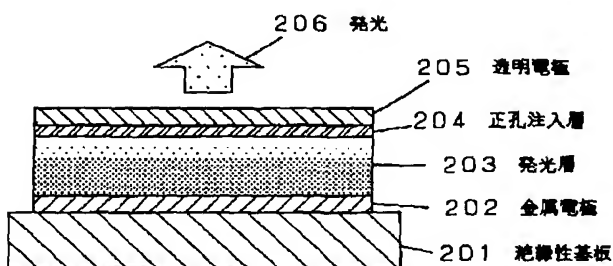
【符号の説明】

- 101 ガラス基板
- 102 透明電極
- 103 発光層
- 104 金属電極
- 105 発光

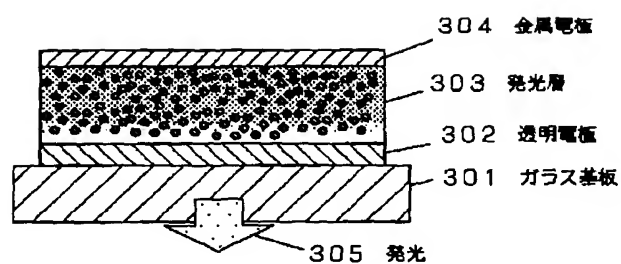
【図1】



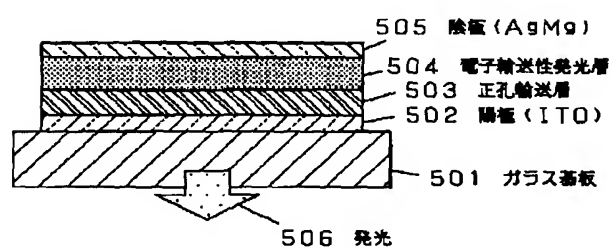
【図2】



【図3】



【図5】



【図4】

